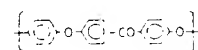
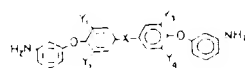


## (54) RESIN COMPOSITION

- (11) 1-188555 (A) (43) 27.7.1989 (19) JP  
 (21) Appl. No. 63-10781 (22) 22.1.1988  
 (71) MITSUI TOATSU CHEM INC (72) MASAMI AMANO(3)  
 (51) Int. Cl. C08L71.00, C08L71.00, C08L79:08



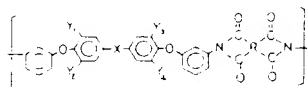
I



II



III



IV

**PURPOSE:** To obtain a resin composition enhanced in the mechanical strength under high temperature and high load without impairing the characteristics inherent in polyether ketone, by blending a polyether ketone with a polyimide.

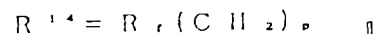
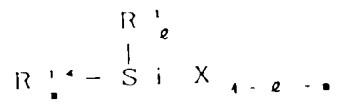
**CONSTITUTION:** The objective composition can be obtained by premixing, using e.g., a Henschel mixer, (A) 50~95 (pref. 40~90)wt.% of a polyether ketone, e.g., constituted of recurring unit of formula I and (B) 5~50 (pref. 10~40)wt.% of a polyimide constituted of recurring unit of formula IV produced by thermally or chemically imidization of a polyamic acid prepared by reaction between (i) an etherdiamine of formula II (X is direct bond, 1~10C divalent hydrocarbon group, hexafluorinated isopropylidene group, etc.; Y<sub>1</sub>~Y<sub>4</sub> are H, lower alkyl, lower alkoxy, etc.) and (ii) at least one kind of tetracarboxylic anhydride of formula III (R is ≥2C aliphatic group, alicyclic group, etc.) followed by kneading in a molten state, thus obtaining the objective composition.

## (54) ANTIFOULING SEALANT COMPOSITION

- (11) 1-188556 (A) (43) 27.7.1989 (19) JP  
 (21) Appl. No. 63-10910 (22) 22.1.1988  
 (71) ASAHI GLASS CO LTD (72) HARUHISA MIYAKE(2)  
 (51) Int. Cl. C08L71.02, C07F7/18, C09D5/34

**PURPOSE:** To obtain the subject composition outstanding in both water- and oil-repellency, by incorporating a polyether polymer having organosilicon functional group with an organosilicon compound having a combination of polyfluoroalkyl group and hydrolyzable functional group.

**CONSTITUTION:** The objective composition can be obtained by incorporating (A) 100 pts.wt. of a polyether polymer having organosilicon functional group (pref. hydrolyzable), with a viscosity (at 25°C) of 100~500,000 (pref. 1,000~150,000)cps with (B) 0.1~100 (pref. 0.5~50) pts.wt. of an organosilicon compound having a combination of polyfluoroalkyl group and hydrolyzable functional group, pref. a compound of formula I (m≤1, 1~m≤3; R<sup>1</sup> is 1~12C alkyl or aryl; X is halogen, OH, etc.; R<sup>1\*</sup> is of formula II (R<sub>f</sub> is 1~20C perfluoroalkyl; p is 1~5)) or a partial hydrolyzate therefrom.

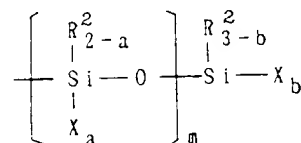


## (54) CURABLE COMPOSITION

- (11) 1-188557 (A) (43) 27.7.1989 (19) JP  
 (21) Appl. No. 63-11789 (22) 21.1.1988  
 (71) KANEGAFUCHI CHEM IND CO LTD (72) TOSHIBUMI HIROSE(1)  
 (51) Int. Cl. C08L71.02, C08K5.54

**PURPOSE:** To obtain the subject composition, curable by, e.g., moisture, capable of giving cured products with dust hard-to-adhere thereto, by incorporating an oxyalkylene polymer having reactive silicon-contg. group with a silicone compound containing long chain hydrocarbon group.

**CONSTITUTION:** The objective composition can be obtained by incorporating (A) 100 pts.wt. of an oxyalkylene polymer having the main chain constituted of recurring unit of formula II (R<sup>1</sup> is divalent organic group), also having Si-bonded OH or hydrolyzable group (pref. alkoxy group) and Si-contg. group crosslinkable by forming siloxane linkage (pref. group of formula I (R<sup>2</sup> is (substituted) 1~20C monovalent organic group or triorganosiloxy group; X is OH or hydrolyzable group; a is 0~2; b is 0~3, (ma+b)≥1; m is 0~19)) (pref. methoxysilyl group) with (B) 0.1~30 pts.wt. of a silicone compound containing long chain hydrocarbon group (pref. 8~20C alkyl).



I



II

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平1-188557

⑬ Int. Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成1年(1989)7月27日

C 08 L 71/02  
C 08 K 5/54

L Q C  
C A M

8830-4 J

審査請求 未請求 請求項の数 7 (全9頁)

⑮ 発明の名称 硬化性組成物

⑯ 特 願 昭63-11789

⑰ 出 願 昭63(1988)1月21日

⑱ 発 明 者 広 瀬 俊 文 兵庫県神戸市須磨区神の谷7-2-3

⑲ 発 明 者 諫 山 克 彦 兵庫県神戸市北区筑紫が丘4-8-7

⑳ 出 願 人 鐘淵化学工業株式会社 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

㉑ 代 理 人 弁理士 朝日奈 宗太 外1名

明 和 信

1 発明の名称

硬化性組成物

2 特許請求の範囲

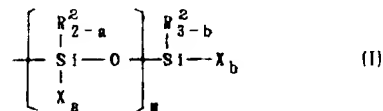
1 ケイ素原子に結合した水酸基または加水分解性基を有し、シロキサン結合を形成することにより架橋しうるケイ素含有基を少なくとも1個有するオキシアルキレン系重合体 100重量部に対して、長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を 0.1~30重量部の範囲で含有させる硬化性組成物。

2 前記オキシアルキレン系重合体が、本質的に一般式：

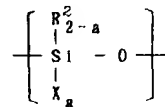


(式中、 $R^1$  は2価の有機基)で示される繰返し単位からなる主鎖を有するオキシアルキレン系重合体である請求項1記載の組成物。

3 前記ケイ素含有基が一般式(I)：



(式中、 $R^2$  は炭素数1~20の置換もしくは非置換の1価の有機基またはトリオルガノシロキシ基であり、 $(m(2-a)+3-b)$ 個の $R^2$ は同じであってもよく、異なっているもよい、 $X$ は水酸基または加水分解性基であり、 $(ma+b)$ 個の $X$ は同じであってもよく、異なっているもよい、 $a$ は0、1または2、 $b$ は0、1、2または3、ただし $(ma+b) \geq 1$ 、 $n$ 個の



における $a$ は同じである必要はない、 $m$ は0または1~10の整数)で表わされる基である請求項1記載の組成物。

4 一般式(I)中の $X$ が水素原子、ハロゲン原子、水酸基、アルコキシ基、アシルオキシ基、ケトキシメート基、アミノ基、酸アミド基、ア

ミノオキシ基、メルカプト基またはアルケニルオキシ基であり、X が 2 個以上存在するとき、それらは同じであってもよく、異なってもよい請求項 3 記載の組成物。

5 一般式(I)中の X がアルコキシ基である請求項 3 記載の組成物。

6 前記ケイ素含有基がメトキシシリル基 ( $\geq \text{Si}-\text{OCH}_3$ ) である請求項 1 または 3 記載の組成物。

7 前記長鎖炭化水素基含有シリコン化合物が、炭素数 8~20 のアルキル基含有シリコン化合物である請求項 1 記載の組成物。

### 3 発明の詳細な説明

#### 〔産業上の利用分野〕

本発明は湿気などにより硬化し、表面特性の改善された(埃や塵が付着しにくい)硬化物を与える組成物に関する。さらに詳しくは、ケイ素原子に結合した水酸基または加水分解性基を有し、シロキサン結合を形成することにより架

橋しうるケイ素含有基(以下、反応性ケイ素基ともいう)を有するオキシアルキレン系重合体と長鎖炭化水素基含有シリコン化合物とを含有する硬化性組成物に関する。

〔従来の技術・発明が解決しようとする課題〕

分子内に少なくとも 1 個の反応性ケイ素基を有する有機重合体として数多くの提案がなされており、たとえば主鎖がポリオキシプロピレンからなり末端にメトキシシリル基が結合した有機重合体のように、既に工業的に生産されているもの(商品名 HS ポリマー、鐘淵化学工業株式会社)もある。

該有機重合体は各種配合剤と配合され、シーリング剤などの用途に使用されているが、その配合組成や使用条件などによっては硬化物の表面に塵や埃が付着することがあり、その改善が望まれている。

〔課題を解決するための手段〕

本発明者らは、前記有機重合体からの硬化物の埃や塵の付着を減少させるために鋭意検討を

重ねた結果、該有機重合体に長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を添加することにより目的が達せられることを見出し、本発明に到達した。

すなわち本発明は、ケイ素原子に結合した水酸基または加水分解性基を有し、シロキサン結合を形成することにより架橋しうるケイ素含有基を少なくとも 1 個有するオキシアルキレン系重合体 100 部(重量部、以下同様)に対して、長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を 0.1~30 部の範囲で含有させてなる硬化性組成物に関する。

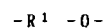
#### 〔実施例〕

本発明においては、反応性ケイ素基を少なくとも 1 個有するオキシアルキレン系重合体(以下、オキシアルキレン系重合体(A)ともいう)が用いられる。

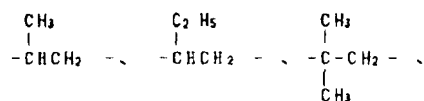
前記オキシアルキレン系重合体(A)は、すでに特公昭 45-36319 号、同 46-12154 号、同 49-32673 号、特開昭 50-150599 号、同 51-73561 号、同 54-6098 号、同 55-82123 号、同 55-123620 号、同 55-125121 号、同 55-131022 号、同 55-

135135 号、同 55-137129 号の各公報などに提案されている重合体である。

オキシアルキレン系重合体(A)の分子鎖は、本質的に一般式:



(式中、 $R^1$  は 2 価の有機基)で示される繰返し単位からなるものである。 $R^1$  は炭素数 1~10 の 2 価のアルキル基であることが好ましく、とくに炭素数 2~4 の 2 価のアルキル基であることが好ましい。またこのアルキル基は一部の酸素原子が塩素原子のような置換基で置換されている置換炭素水素基であってもよい。 $R^1$  の具体例としては、たとえば

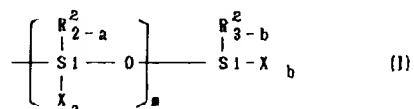


$-\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2-$  などがあげられ、とくに

$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ | \\ -\text{CHCH}_3- \end{array}$  が好ましい。前記オキシアルキレン系重合体(A)の分子鎖は 1 種だけの繰返し単位か

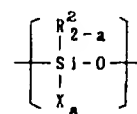
らなっているてもよいし、2種以上の繰返し単位からなっているてもよい。またオキシアルキレン重合体(A)の分子鎖は $-R^1-O-$ 以外の単位を含有しているてもよく、このばあい $-R^1-O-$ で示される単位の合計量が重合体中50重量%以上であることが好ましい。

オキシアルキレン系重合体(A)におけるシロキサン結合を形成することによって架橋および(または)重合しうる反応性ケイ素基はよく知られた官能基であり、窒素においても架橋しうるという特徴を有している。この反応性ケイ素基の代表例としては、一般式(I)：



(式中、 $R^2$ は炭素数1~20の置換もしくは非置換の1価の有機基またはトリオルガノシロキシ基で、 $(m(2-a) + 3-b)$ 個の $R^2$ は異なっているてもよい、 $X$ は水酸基または加水分解性基であり、 $(ma+b)$ 個の $X$ は異なっているてもよい、 $a$ は

0、1または2、 $b$ は0、1、2または3、ただし $(ma+b) \geq 1$ 、 $m$ 個の



における $a$ は同じである必要はない、 $m$ は0~19の整数)で表わされる基があげられる。一般式(I)で表わされる反応性ケイ素基のうちでは経済性などの点から一般式(II)：



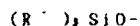
(式中、 $R^2$ は前記に同じ、 $b$ は1、2または3)で表わされる基が好ましい。

一般式(I)における $X$ の1種である加水分解性基の具体例としては、たとえば塩素原子などのハロゲン原子、水素原子、メトキシ基、エトキシ基などのアルコキシ基、アセトキシ基などのアシルオキシ基、ジメチルケトキシメート基のようなケトキシメート基、ジメチルアミノ基のようなアミノ基、 $N$ -メチルアセトアミド基のよ

— 7 —

うな酸アミド基、ジメチルアミノオキシ基のようなアミノオキシ基、チオフェノキシ基のようなメルカプト基、イソプロペニルオキシ基のようなアルケニルオキシ基などがあげられる。これらのうちでは加水分解性がマイルドであるという点からメトキシ基、エトキシ基などのアルコキシ基が好ましい。

また一般式(I)における $R^2$ の具体例としては、たとえばメチル基、エチル基などのアルキル基、シクロヘキシル基などのシクロアルキル基、フェニル基などのアリール基、ベンジル基などのアラルキル基や、一般式：



( $R^3$ はメチル基、フェニル基などの炭素数1~20の置換もしくは非置換の1価の有機基で、3個の $R^3$ は同じである必要はない)で示されるトリオルガノシロキシ基などがあげられる。これらのうちではメチル基がとくに好ましい。

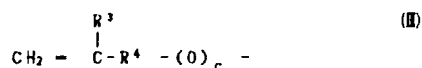
オキシアルキレン系重合体(A)中の反応性ケイ素基の個数は1個以上あればよいが、充分な

— 8 —

硬化性をいうという点からすると平均1.1個以上、さらには1.5~4個が好ましい。また反応性ケイ素基はオキシアルキレン系重合体(A)の分子鎖末端に存在するのが好ましい。

オキシアルキレン系重合体(A)は、数平均分子量が500~90,000のものが好ましく、3,000~15,000のものがさらに好ましい。オキシアルキレン系重合体(A)は単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

オキシアルキレン系重合体(A)は、たとえば一般式(I)で表わされる基に水素原子が結合したヒドロシリル化合物と、一般式(III)：



(式中、 $R^3$ は水素原子または炭素数1~20の1価の有機基、 $R^4$ は炭素数1~20の2価の有機基、 $c$ は0または1)で示されるオレフィン基を有するオキシアルキレン系重合体とを、白金化合物などのVIII族遷移金属化合物などを触媒として付加反応させるなどの方法により製造さ

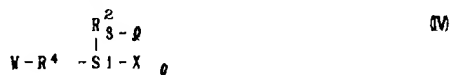
— 9 —

— 10 —

れる。

前記以外のオキシアルキレン系重合体(A)を製造する方法としては、

①水酸基末端オキシアルキレン系重合体にトルエンジイソシアネートのようなポリイソシアネート化合物を反応させてイソシアネート基末端オキシアルキレン系重合体とし、そののち該イソシアネート基に一般式(Ⅳ)：



(式中、Nは水酸基、カルボキシル基、メルカプト基およびアミノ基(1級または2級)から選ばれた活性水素含有基、X、R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup>およびXは前記に同じ)で示されるシリコン化合物のN基を反応させる方法、

②一般式(Ⅳ)で示されるオレフィン基を有するオキシアルキレン系重合体のオレフィン基に、Nがメルカプト基である一般式(Ⅳ)で示されるシリコン化合物のメルカプト基を付加反応させる方法、および

— 1 1 —

炭素数1~20の置換もしくは非置換の1価の有機基であるが、水素原子または炭化水素基であるのが好ましく、とくに水素原子であるのが好ましい。また、R<sup>4</sup>は炭素数1~20の2価の有機

基であるが、-R<sup>5</sup>-、-R<sup>5</sup>OR<sup>5</sup>-、-R<sup>5</sup>-OC(=O)-、

-R<sup>5</sup>NHC(=O)-、-R<sup>5</sup>C(=O)- (R<sup>5</sup>は炭素数1~10の2価の炭化水素基)であるのが好ましく、とくにメチレン基であるのが好ましい。

一般式(Ⅳ)で示されるオレフィン基を有するオキシアルキレン系重合体の具体的製造法としては、特開昭 54-6097号公報に開示されているように、たとえばオキシアルキレン系重合体の末端水酸基と不飽和基を有する化合物とを反応させてエーテル結合、エステル結合、ウレタン結合、カーボネート結合などにより結合させて製造する方法、あるいはエチレンオキシド、プロピレンオキシドなどのエポキシ化合物を重合する際に、アリルグリシジルエーテルなどのオレ

— 1 3 —

③水酸基末端オキシアルキレン系重合体の水酸基に、一般式(Ⅴ)：



(式中、R<sup>2</sup>、R<sup>4</sup>、XおよびXは前記に同じ)で表わされる化合物を反応させる方法などが具体的にあげられるが、これらの方法に限定されるものではない。

前記一般式(Ⅴ)で示される基に水素原子が結合したヒドロシリル化合物と一般式(Ⅴ)で示されるオレフィン基を有するオキシアルキレン系重合体とを反応させる方法において、それらを反応させたのち、一部または全部のX基をさらに他の加水分解性基または水酸基に変換させてもよい。たとえばX基がハロゲン原子や水素原子のばあいには、これらの基をアルコキシ基、アシルオキシ基、アミノオキシ基、アルケニルオキシ基、水酸基などに交換して使用するのが好ましい。

一般式(Ⅴ)において、R<sup>2</sup>は水素原子または炭

— 1 2 —

フィン基含有エポキシ化合物を添加して共重合させることにより側鎖にオレフィン基を導入する方法などが例示されうる。

本発明においては、オキシアルキレン系重合体(A)を硬化させた際に埃や塵を付着しにくくさせるために、長鎖炭化水素基含有シリコン化合物が使用される。

前記長鎖炭化水素基含有シリコン化合物における長鎖炭化水素基とは、たとえば片末端にシリコン系基が結合する長鎖アルキル基、長鎖アルケニル基、長鎖アルキル基や長鎖アルケニル基を有するシクロアルキル基やアリール基、さらには両末端にシリコン系基が結合する長鎖アルキレン基などであり、直線状につらなっている炭化水素部分(環を形成している炭素原子を含まない)の炭素原子数が8以上、好ましくは8~20の炭化水素基のことである。

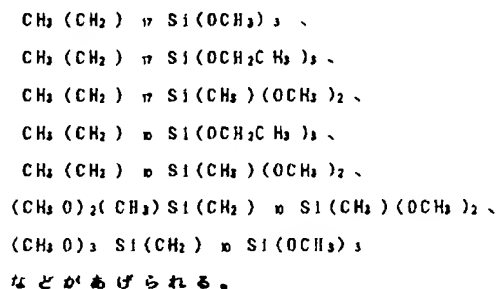
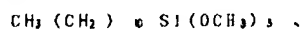
前記長鎖アルキル基の具体例としては、たとえばn-オクチル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基、テトラデシル基、

— 1 4 —

セチル基、ステアシル基、エイコシル基など、長鎖アルケニル基の具体例としては、たとえばオクテニル基、ノネニル基、デセニル基、ドデセニル基、テトラデセニル基、ヘキサデセニル基、オクタデセニル基、エイコセニル基、オクタデカジエニル基、9,12,15-オクタデカトリエニル基、9,11,13-オクタデカトリエニル基など、長鎖アルキレン基の具体例としては、たとえば  $-(CH_2)_8-$ 、 $-(CH_2)_9-$ 、 $-(CH_2)_{10}-$ 、 $-(CH_2)_{11}-$ 、 $-(CH_2)_{12}-$ 、 $-(CH_2)_{13}-$  などがあげられる。

また前記長鎖炭化水素基含有シリコン化合物には反応性ケイ素基が含有されている。この反応性ケイ素基は、前述のオキシアルキレン系重合体(A)が有する反応性ケイ素基と同様の基であるが、経済性などの点からケイ素原子が1個の反応性ケイ素基が好ましい。

前記長鎖炭化水素基含有シリコン化合物の具体例としては、たとえば



などがあげられる。

長鎖炭化水素基含有シリコン化合物の使用量はオキシアルキレン系重合体(A)100部に対して0.1~30部、好ましくは0.5~20部である。前記使用量が0.1部未満になると長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を用いる目的である埃や塵の付着防止効果が充分発現せず、30部以上になると高価になるうえ、引張特性などが損われる。

オキシアルキレン系重合体(A)と長鎖炭化水素基含有シリコン化合物とを用いて調製される本発明の組成物の調製方法にはとくに制限はないが、具体的な方法の1つとして長鎖炭化水素基含有シリコン化合物をオキシアルキレン系重

— 15 —

合体(A)に単に添加する方法があげられる。このばあい、長鎖炭化水素基含有シリコン化合物の性状などに応じて加熱攪拌条件などを適宜調整し、均一に分散、溶解させればよい。しかし、完全に均一透明な状態にする必要はなく、不透明な状態であっても分散していれば充分目的は達せられる。また、必要に応じて、たとえば界面活性剤などの分散性改良剤を併用してもよい。

本発明の組成物には、さらに必要に応じて硬化触媒、静電気による埃の付着を少なくするための使用帯電防止剤、引張特性などを改善する物性調整剤、補強性または非補強性の充填剤、補強材、可塑剤、接着促進剤、曇れ防止剤、着色剤、老化防止剤、難燃剤などの各種添加剤を配合してもよい。

前記硬化触媒の具体例としては、たとえばテトラブチルチタネート、テトラプロピルチタネートなどのチタン類エステル類；ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫マレエート、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫ジアセチルアセト

— 17 —

— 16 —

ナート、オクチル酸錫、ナフテン酸錫などの有機錫化合物；オクチル酸鉛；ブチルアミン、オクチルアミン、ラウリルアミン、ジブチルアミン、モノエタノールアミン、ジエタノールアミン、トリエタノールアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、オレイルアミン、オクチルアミン、シクロヘキシルアミン、ベンジルアミン、ジエチルアミノプロピルアミン、キシリレンジアミン、トリエチレンジアミン、グアニジン、ジフェニルグアニジン、2,4,6-トリス(ジメチルアミノメチル)フェノール、モルホリン、N-メチルモルホリン、1,8-ジアザビスクロ(5,4,0)ウンデセン-7(DBU)などのアミン系化合物あるいはそれらのカルボン酸などの塩；過剰のポリアミンと多塩基酸よりえられる低分子量ポリアミド樹脂；過剰のポリアミンとエポキシ化合物との反応生成物；アミノ基を有するシランカップリング剤、たとえばγ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシ

— 18 —

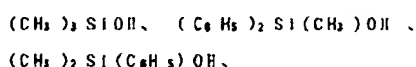
シランなどの公知のシラノール縮合触媒などがあげられる。これらは単独で使用してもよく、2種以上併用してもよい。

前記帯電防止剤の具体例としては、たとえば「9586の化学商品」775～776頁（昭和81年1月30日化学工業日報社発行）などに記載のポリオキシエチレンアルキルアミン、ポリオキシエチレンアルキルアミド、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル、グリセリン部分脂肪酸エステル、ソルビタン部分脂肪酸エステルなどの非イオン系の帯電防止剤、アルキルスルホネート、アルキルベンゼンスルホネート、アルキルサルフェート、アルキルホスフェートなどのアニオン系の帯電防止剤、第4級アンモニウムクロライド、第4級アンモニウムサルフェート、第4級アンモニウムナイトレートなどのカチオン系の帯電防止剤、アルキルベタイン型、アルキルイミダゾリン型、アルキルアラニン型などの両性系の帯電防止剤、ポリビニルベンジル型カチ

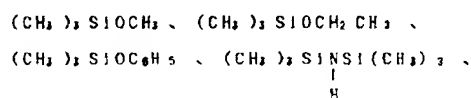
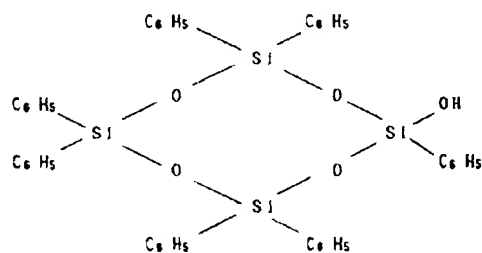
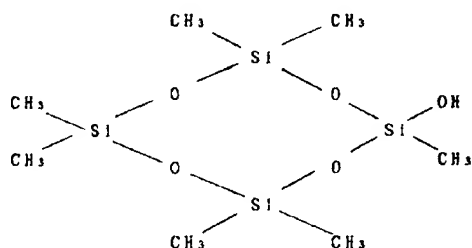
オン、ポリアクリル酸型カチオンなどの導電性樹脂系の帯電防止剤などがあげられる。

前記引張特性などを改良する物性調整剤の例としては各種シランカップリング剤、たとえばγ-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシランなどの官能基を有するアルコキシシラン類、ジメチルジイソプロペノキシシランやγ-グリシドキシプロピルメチルジイソプロペノキシシランなどの官能基を有するイソプロペノキシシラン類などがあげられる。

また、前記硬化物の硬度を下げて伸びを出すものの具体例としては、たとえば

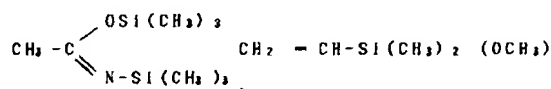


— 19 —



— 21 —

— 20 —



などのような特開昭61-34066号公報などに記載されている化合物があげられるが、これらに限定されるものではない。

前記充填剤や補強材の具体例としては、膠質炭酸カルシウム、重質または軽質炭酸カルシウム；脂肪酸、樹脂酸、陽イオン界面活性剤、陰イオン界面活性剤などで表面処理を行なった炭酸カルシウム；炭酸マグネシウム；タルク；酸化チタン；硫酸バリウム；アルミナ；アルミニウム、亜鉛、鉄などの金属粉；ベントナイト；カオリン；クレー；ヒュームドシリカ；石英粉；ホワイカーボン、カーボンブラック；石棉、ガラス繊維など、通常使用されるものがあげられる。とくにヒュームドシリカなど透明性を与える充填剤や補強材を用いると透明性に優れたシーリング剤をつくることも可能である。前記充填剤や補強材は単独で使用してもよく、2種以上使

— 22 —

用してもよい。

物性の調節、性状の調節などのために使用される前記可塑剤の具体例としては、たとえばジブチルフタレート、ジヘブチルフタレート、ジ(2-エチルヘキシル)フタレート、ジオクチルフタレート、ブチルベンジルフタレート、ブチルフタリルブチルグリコレートなどのフタル酸エステル類；ジオクチルアジベート、ジオクチルセバケートなどの非芳香族2塩基酸エステル類；ジエチレングリコールジベンゾエート、トリエチレングリコールジベンゾエートなどのポリアルキレングリコールのエステル類；トリクレンジルホスフェート、トリブチルホスフェートなどのリン酸エステル類；塩化パラフィン類；アルキルジフェニル、部分水添ターフェニルなどの炭化水素系油などがあげられる。これらは単独または2種以上混合して使用することができるが、必ずしも必要とするものではない。なお、それら可塑剤は重合体製造時に配合してもよい。

— 2 3 —

紫外線吸収剤などがあげられる。

本発明の組成物には作業性の改善、粘度の低下などのために溶剤を配合してもよく、たとえばトルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶剤、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル、酢酸セロソルブなどのエステル系溶剤、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトンなどのケトン系溶剤が具体例としてあげられる。これらの溶剤は重合体製造時に用いてもよい。

たとえば本発明の組成物をシーリング剤に用いるばあい、すべての配合成分を予め配合して密封保存し、施工後空気中の湿気により硬化させる1成分型として調製してもよく、また硬化剤として別途硬化触媒、充填剤、可塑剤、水などの成分を予め配合しておき、該配合剤(材)と本発明の組成物とを使用前に混合する2成分型として調製してもよい。

前記シーリング剤が1成分型のばあい、すべての配合成分が予め配合されるため、水分を含

前記接着促進剤はオキシアルキレン系重合体(A)自体がガラス、ガラス以外のセラミック類、金属などに対し良好な接着性を有し、また各種プライマーを用いれば広範囲の材料に接着させることが可能であるので必ずしも必要ではないが、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、物性調整剤としてすでに記載した各種シランカップリング剤、アルキルチタネート類、芳香族ポリイソシアネートなどを1種または2種以上用いることにより、さらに多種類の被着体に対する接着性を改善することができる。

前記垂れ防止剤としては、たとえば水添ヒマシ油誘導体；ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸アルミニウム、ステアリン酸バリウムなどの金属石ケン類などがあげられるが、使用目的、配合する充填剤や補強材によっては不要である。

前記着色剤としては、必要に応じて通常の無機顔料、有機顔料、染料などが使用されうる。

前記老化防止剤としては、通常の酸化防止剤、

— 2 4 —

有する配合成分は予め脱水・乾燥してから使用するが、また配合・混練中に減圧などして脱水するのが好ましい。

前記シーリング剤が2成分型のばあい、オキシアルキレン系重合体(A)および長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を含有する主剤に硬化触媒が配合されていないので主剤中には若干の水分を含有していてもゲル化の心配は少ないが、長期間の貯蔵安定性を必要とするばあいには脱水・乾燥させるのが好ましい。

前記脱水・乾燥法としては、粉状などの固状物のばあいには加熱乾燥法、液状物のばあいには減圧脱水法や合成ゼオライト、活性アルミナ、シリカゲルなどを使用した脱水法が好適である。また、イソシアネート化合物を少量配合してイソシアネート基と水とを反応させて脱水してもよい。

かかる脱水・乾燥法に加えてメタノール、エタノールなどの低級アルコール；n-プロピルトリメトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシ

— 2 5 —

— 2 6 —

ラン、アーマルカプトプロピルメチルジメトキシシラン、アーマルカプトプロピルメチルジエトキシシラン、アーマグリシドキシプロピルトリメトキシシランなどのアルコキシシラン化合物を添加することにより、さらに貯蔵安定性は向上する。

このようにしてえられる本発明の硬化性組成物は接着剤や粘着剤、塗料、密封剤やシーリング剤、防水剤、吹付剤、型取り用材料および注型ゴム材料などとして有用に使用することができる。なかでも、密封剤への応用はとくに有用である。

以下、実施例をあげて本発明の組成物を具体的に説明する。

#### 実施例 1～11および比較例 1

1分子当たり約2個のジメトキシシリル基( $-\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OCH}_3)_2$ )を含有する平均分子量9800のプロピレンオキシド系重合体100gに対し、第1表に示す長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を第1表に示す量添加したのち、膠質炭酸カル

シウム(白石工業製、商品名CCR)150g、ジオクチルフタレート65g、ヒンダードフェノール系老化防止剤(大内新興化学製、商品名ノクラックNS-G)1g、オクチル酸錫(II)3g、ラウリルアミン1gを添加し、充分混練してから小型3本ペイントロールを3回通し、厚さ約3mmのシートを作製した。そののち、28℃、65%RHで1日間養生したのち屋外に曝露し(南面45度傾斜)、埃の付着状態を観察した。結果を長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を添加しない比較例1のばあいとともに第1表に示す。

なお、第1表中の埃付着性評価における○は埃がほとんど付着しない、△は埃が少し付着する、×は埃がかなり付着するを表わす。

[以下余白]

— 27 —

— 28 —

第 1 表

実施例番号		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	比較例1
長鎖炭化水素基化合物含有(g)	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{17}\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OCH}_3)_2$	2	—	—	—	—	—	—	—	5	10	20	—
	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{17}\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	—	2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{17}\text{Si}(\text{OCH}_2\text{CH}_3)_3$	—	—	2	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{10}\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	—	—	—	2	—	5	1	0.5	—	—	—	—
	$(\text{CH}_3\text{O})_3\text{Si}(\text{CH}_2)_{10}\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—	—	—
埃付着性	屋外曝露 1ヵ月後	○	○	○	○	○	○	○	△○	○	○	○	△
	“ 2ヵ月後	△	△	△	○	○	○	△	△	○	○	○	×

— 29 —

第1表の結果より、長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を添加すると埃の付着が少なくなることがわかる。

実施例12~16および比較例2

1分子当り平均2.7個のジメトキシシリル基(-Si(CH<sub>3</sub>)(OCH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>)を含有する平均分子量10000のプロピレンオキシド系重合体100gにC<sub>6</sub>H<sub>5</sub>OSi(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>を3g添加し、80℃で2時間攪拌したもの100gに対し、第2表に示す長鎖炭化水素基含有シリコン化合物を第2表に示す量添加したものを使用した他は実施例1~11と同様の条件で評価を行なった。結果を第2表に示す。

[以下余白]

第2表

実施例番号	12	13	14	15	16	比較例2
長鎖シロリン酸トリメチル	2	—	—	—	—	—
水溶性化	—	2	—	—	—	—
無水化	—	—	2	—	1	—
重合	—	—	—	2	—	—
含有物	—	—	—	—	—	—
塊状	○	○	○	○	○	△
粉状	△	○	○	○	○	△
性状	屋外曝露 1ヵ月後					
	2ヵ月後					